

(12)特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局(43) 国際公開日  
2004 年 7 月 22 日 (22.07.2004)

PCT

(10) 国際公開番号  
WO 2004/061010 A1

- (51) 国際特許分類: C08L 101/14, C08K 3/00, 5/00
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2003/014865
- (22) 国際出願日: 2003 年 11 月 21 日 (21.11.2003)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2002-381202  
2002 年 12 月 27 日 (27.12.2002) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友精化株式会社 (SUMITOMO SEIKA CHEMICALS CO., LTD.) [JP/JP]; 〒675-0145 兵庫県 加古郡 播磨町宮西 3 4 6 番地の 1 Hyogo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 半田 昌良 (HANDA, Masayoshi) [JP/JP]; 〒672-8076 兵庫県 姫路
- 市 飾磨区入船町 1 番地 住友精化株式会社 機能樹脂研究所内 Hyogo (JP). 縄田 康博 (NAWATA, Yasuhiro) [JP/JP]; 〒672-8076 兵庫県 姫路市 飾磨区入船町 1 番地 住友精化株式会社 機能樹脂研究所内 Hyogo (JP).
- (74) 代理人: 細田 芳徳 (HOSODA, Yoshinori); 〒540-6591 大阪府 大阪市 中央区大手前一丁目 7 番 3 1 号 OMM ビル 5 階 私書箱 2 6 号 細田国際特許事務所内 Osaka (JP).
- (81) 指定国 (国内): BR, CN, KR, SG, US.
- (84) 指定国 (広域): ヨーロッパ特許 (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IT, LU, MC, NL, PT, RO, SE, SI, SK, TR).
- 添付公開書類:  
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: WATER-ABSORBING RESIN COMPOSITION

(54) 発明の名称: 吸水性樹脂組成物

(57) Abstract: A water-absorbing resin composition which comprises an oxygenic reducible inorganic salt and a water-absorbing resin and has an iron content of 1 ppm or lower; an absorbent comprising the water-absorbing resin composition and hydrophilic fibers; and an absorbing article which comprises a liquid-permeable sheet, a liquid-impermeable sheet, and the absorbent held therebetween.

(57) 要約: 含酸素還元性無機塩および吸水性樹脂を含有してなり、鉄含有量が 1ppm 以下である吸水性樹脂組成物、前記吸水性樹脂組成物と親水性繊維とを有する吸収体、ならびに液体透過性シートと液体不透過性シートとの間に、前記吸収体が保持されてなる吸収性物品。

WO 2004/061010 A1

## 明細書

### 吸水性樹脂組成物

#### 技術分野

本発明は、吸水性樹脂組成物に関する。さらに詳しくは、吸水性樹脂組成物、それが用いられた吸収体および吸収性物品に関する。吸収性物品は、紙オムツ、生理用ナプキン、失禁パッド等の衛生材料、ペット用の尿吸収材料等をはじめ、パッキング材等の土木建築用資材、ドリップ吸収剤、保冷剤等の食品鮮度保持用材料、土壌用保水材等の農園芸用物品等として好適に使用しうるものである。

#### 背景技術

紙おむつや生理用ナプキン等の吸水性物品は、一般に、親水性繊維および吸水性樹脂で構成される吸収体を、身体に接する側に配される液体透過性シートとその反対側に配される液体不透過性シートとの間に挟むことによって形成されている。

近年、吸収体やそれが用いられた紙おむつや生理用ナプキン等は、携帯時の利便性や快適な装着感を達成するために、薄型化される傾向がある。その薄型化に伴い、多量の液体を吸収した場合であっても逆戻りや漏れを減少させるために、吸収体に用いられる親水性繊維の量を減らし、吸水性樹脂の量を増やした吸収体の開発が検討されている。

しかし、吸水性樹脂が人尿等の体液を吸収することによって生成したゲルは、一般に、経時的に劣化するため、その吸収性が低下するようになる。また、ゲルの劣化がさらに進行すると、吸水性樹脂自体が部分的に分解するため、ゲルから水溶性溶解物が溶出するようになる。

したがって、この吸水性樹脂が用いられた製品を人体と接触させて使用した場

合には、溶出した水溶性溶解物が皮膚に付着し、かぶれ等が発生するおそれがある。

さらに、吸水性樹脂量が多い吸収体では、吸水性樹脂同士が互いに接触した状態でゲルが劣化するため、溶出した水溶性溶解物がゲル粒子間の隙間を閉塞し、液が吸水性樹脂に浸透するのが妨げられる現象、いわゆる「ゲルブロッキング」が生じやすくなる。このゲルブロッキングは、吸収体の液漏れの要因の1つとして考えられている。

ゲルの劣化が生じる機構は複雑なため、その原因を特定することは難しいが、その原因の1つとして、人尿中の鉄分や吸水性樹脂中の鉄分が関係しているものと推測されている。

そこで、ゲルの安定性を向上させるために、含酸素還元性無機塩を含有する吸水性樹脂組成物（特開昭63-118375号公報）、ラジカル連鎖禁止剤および金属キレート剤を含有する吸水性樹脂組成物（特開平1-210463号公報）等が提案されている。

しかしながら、これらの吸水性樹脂組成物には、吸収体に含まれる吸水性樹脂量が多い場合に、十分なゲルの安定性を発現させることができないという欠点がある。

また、吸水性樹脂は、高温高湿の雰囲気中で長時間保存された場合、部分的に変性するため、着色が発生する場合がある。吸水性樹脂が着色した場合、その吸水性樹脂が用いられた吸収体や吸収性物品の外観が損なわれるため、製品的価値の低下を招くことになる。特に、吸水性樹脂量が多い吸収体および吸収性物品においては、吸水性樹脂の着色が目立ちやすくなる。

したがって、近年、吸水性樹脂の耐着色性の改良が望まれている。吸水性樹脂の着色の機構は、前記ゲルの劣化、分解が生じる機構と同じように非常に複雑であるため、その着色の原因を特定することは困難であるが、その原因の1つとして、吸水性樹脂中に含有されている鉄分が関係しているものと推測されている。

吸水性樹脂の耐着色性が改善されたものとしては、吸水性樹脂と有機カルボン酸類および／またはその塩からなる吸水剤組成物（特開 2 0 0 0 - 3 2 7 9 2 6 号公報）、着色防止剤および／または酸化防止剤および／またはホウ素化合物を含む吸水剤組成物（特開 2 0 0 0 - 2 3 0 1 2 9 号公報）等が知られている。

しかしながら、これらの組成物には、吸水性樹脂量が多い吸収体では、十分な耐着色性を発現させることができないという欠点がある。

したがって、吸収体に含まれる吸水性樹脂量が多くても人尿等の体液に対するゲルの安定性に優れ、高温高湿下であっても耐着色性に優れた吸水性樹脂組成物、それが用いられた吸収体および吸収性物品の開発が待ち望まれている。

#### 発明の開示

本発明の目的は、吸収体に含まれる吸水性樹脂量が多くても人尿等の体液に対するゲルの安定性に優れ、高温高湿下であっても耐着色性に優れた吸水性樹脂組成物、それが用いられた吸収体および吸収性物品を提供することにある。

本発明は、

- (1) 含酸素還元性無機塩および吸水性樹脂を含有してなり、鉄含有量が 1 p p m 以下である吸水性樹脂組成物、
  - (2) さらに有機酸化防止剤を含有する前記吸水性樹脂組成物、
  - (3) 前記吸水性樹脂組成物と親水性繊維とを有する吸収体、ならびに
  - (4) 液体透過性シートと液体不透過性シートとの間に、前記吸収体が保持される吸収性物品
- に関する。

#### 発明の詳細な説明

本発明の吸水性樹脂組成物は、含酸素還元性無機塩および吸水性樹脂を含有し、鉄含有量が1 ppm以下である点に、1つの大きな特徴がある。本発明の吸水性樹脂組成物は、かかる特徴を有するので、吸収体に含まれる吸水性樹脂量が多くても人尿等の体液に対するゲルの安定性に優れ、高温高湿下であっても耐着色性に優れるという効果が発現される。

また、本発明の吸水性樹脂組成物が、さらに有機酸化防止剤を含有する場合には、人尿等の体液のみならず、電解質水溶液に対するゲルの安定性にも優れ、高温高湿下であっても耐着色性に優れるという効果が発現される。

本発明に用いられる吸水性樹脂としては、例えば、アクリル酸塩重合体の架橋物、デンプン-アクリル酸塩グラフト共重合体の加水分解生成物の架橋物、ビニルアルコール-アクリル酸塩共重合体の架橋物、無水マレイン酸グラフトポリビニルアルコールの架橋物、架橋イソブチレン-無水マレイン酸共重合体、ポリアクリル酸部分中和物架橋体、酢酸ビニル-アクリル酸エステル共重合体のケン化物等が挙げられる。これらの中では、大量の水を吸収することができ、多少の荷重をかけても吸収した水を分子内に保持することができるので、アクリル酸塩重合体の架橋物が好ましい。

吸水性樹脂における鉄含有量は、得られる吸水性樹脂組成物における鉄含有量を低減させる観点から、1 ppm以下、好ましくは0.5 ppm以下であることが望ましい。

吸水性樹脂の製造法には、特に限定がない。その代表的な製造法としては、鉄含有量が少ない原料を用いて、逆相懸濁重合法、水溶液重合法等により、吸水性樹脂を製造する方法等が挙げられる。

なお、本明細書にいう「鉄含有量」とは、以下の測定方法にしたがって試料における鉄の含有量を測定したときの値である。本発明においては、試料として、具体的には、吸水性樹脂、含酸素還元性無機塩、有機酸化防止剤または吸水性樹脂組成物が用いられる。

### 〔鉄含有量の測定方法〕

試料 1 g を精秤した後、200 mL 容のビーカーに入れ、濃硫酸 3 mL および濃硝酸 5 mL をビーカー内に添加して試料を十分に溶解させ、得られた溶液をその沸点付近まで加熱して試料を分解させる。

次に、得られた黒色の液体が透明となるまで硝酸を攪拌下で添加しつつ、加熱を継続する。透明になった液体をさらに 350 °C で加熱することにより、蒸発乾固し、固形物を回収する。

得られた固形物を 25 °C にまで冷却した後、その固形物全量と濃塩酸 1 mL とを 50 mL 容のメスフラスコ内に入れ、全量が 50 mL となるように蒸留水を添加して、試料溶液を調製する。

得られた試料溶液の吸光度を、原子吸光分析機〔(株)島津製作所製、品番：AA-6700〕を用いて測定する。

これとは別に、前記と同様の操作により鉄標準溶液の吸光度を測定して検量線を作成しておき、その検量線から試料中の鉄含有量 (ppm) を算出する。

本発明に用いられる含酸素還元性無機塩としては、例えば、亜硫酸ナトリウム、亜硫酸カリウム、亜硫酸カルシウム、亜硫酸亜鉛、亜硫酸アンモニウム等の亜硫酸塩；亜硫酸水素ナトリウム、亜硫酸水素カリウム、亜硫酸水素カルシウム、亜硫酸水素アンモニウム等の亜硫酸水素塩；ピロ亜硫酸ナトリウム、ピロ亜硫酸カリウム、ピロ亜硫酸アンモニウム等のピロ亜硫酸塩；亜二チオン酸ナトリウム、亜二チオン酸カリウム、亜二チオン酸アンモニウム、亜二チオン酸カルシウム、亜二チオン酸亜鉛等の亜二チオン酸塩；三チオン酸カリウム、三チオン酸ナトリウム等の三チオン酸塩；四チオン酸カリウム、四チオン酸ナトリウム等の四チオン酸塩；チオ硫酸ナトリウム、チオ硫酸カリウム、チオ硫酸アンモニウム等のチオ硫酸塩；亜硝酸ナトリウム、亜硝酸カリウム、亜硝酸カルシウム、亜硝酸亜鉛等の亜硝酸塩等が挙げられる。これらの中では、ゲルの安定性および耐着色性を高める観点から、亜硫酸塩、亜硫酸水素塩、ピロ亜硫酸塩、亜二チオン酸塩お

よび亜硝酸塩が好ましく、亜硫酸塩および亜硫酸水素塩がより好ましく、亜硫酸ナトリウム、亜硫酸カリウム、亜硫酸水素ナトリウムおよび亜硫酸水素カリウムがさらに好ましい。

含酸素還元性無機塩における鉄含有量は、得られる吸水性樹脂組成物における鉄含有量を低減させる観点から、10 ppm以下、好ましくは5 ppm以下、より好ましくは3 ppm以下であることが望ましい。

含酸素還元性無機塩の量は、ゲルの安定性および耐着色性を高める観点から、吸水性樹脂100重量部に対して、0.01重量部以上、好ましくは0.05重量部以上であることが望ましい。また、含酸素還元性無機塩をあまり多量に使用しても、その量に見合うだけのゲルの安定性および耐着色性が発現されず、却って経済的でなくなるだけでなく、吸水性樹脂組成物における鉄含有量が高くなることから、含酸素還元性無機塩の量は、吸水性樹脂100重量部に対して、5重量部以下、好ましくは3重量部以下であることが望ましい。したがって、これらの事項を考慮すれば、含酸素還元性無機塩の量は、吸水性樹脂100重量部に対して、0.01～5重量部、好ましくは0.05～3重量部であることが望ましい。

本発明の吸水性樹脂組成物は、例えば、吸水性樹脂と含酸素還元性無機塩とを混合することにより得ることができる。その混合方法には、特に限定がない。

吸水性樹脂と含酸素還元性無機塩とを混合する方法の例としては、(イ) 吸水性樹脂を構成する重合前の単量体水溶液に含酸素還元性無機塩を添加して混合する方法；(ロ) 吸水性樹脂の含水ゲル状物に含酸素還元性無機塩を添加して混合する方法；(ハ) 吸水性樹脂を乾燥させている間または乾燥させた後に、含酸素還元性無機塩を吸水性樹脂に添加して混合する方法等が挙げられる。これらの方法の中では、その操作が簡便であることから、前記(ハ)の方法が好ましい。

なお、含酸素還元性無機塩は、ゲルの安定性が損なわれることがないのであれば、粉体および水溶液のいずれの形態でも用いることができる。製造の際の操作

性を考慮すれば、含酸素還元性無機塩は、粉体であることが好ましい。

吸水性樹脂と含酸素還元性無機塩とを混合する際に用いられる混合機としては、例えば、ナウターミキサー、リボン型ブレンダー、クロスロータリーミキサー、コニカルブレンダー、双腕型ニーダー、スクリュウ型ブレンダー、V字型ブレンダー、W字型ブレンダー、タービュライザー等が挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。

かくして得られる本発明の含酸素還元性無機塩および吸水性樹脂を含有する吸水性樹脂組成物における鉄含有量は、1 ppm以下、好ましくは0.5 ppm以下とされ、このように鉄含有量を調整した場合には、満足しうるゲルの安定性および耐着色性を発現させることができる。

なお、本発明においては、前記吸水性樹脂組成物には、さらに有機酸化防止剤を含有させることができる。このように、吸水性樹脂組成物に有機酸化防止剤を含有させた場合には、電解質水溶液に対するゲルの安定性を高めることができる。

有機酸化防止剤には、特に限定がない。有機酸化防止剤としては、例えば、L-アスコルビン酸、L-アスコルビン酸ナトリウム、D-アスコルビン酸、D-アスコルビン酸ナトリウム等のアスコルビン酸類；エリソルビン酸、エリソルビン酸ナトリウム等のエリソルビン酸類；没食子酸、没食子酸メチル、没食子酸エチル、没食子酸n-プロピル、没食子酸イソアミル、没食子酸オクチル、没食子酸ラウリル等の没食子酸類；プロトカテキュ酸、プロトカテキュ酸エチル等のプロトカテキュ酸類；2-メルカプトベンズイミダゾール等のベンズイミダゾール類；ブチルヒドロキシアニソール等のアルキルヒドロキシアニソール類が挙げられ、これらは、それぞれ単独でまたは2種以上を混合して用いることができる。これらの中では、電解質水溶液に対するゲルの安定性に優れていることから、アスコルビン酸類、エリソルビン酸類、没食子酸類、プロトカテキュ酸類、ベンズイミダゾール類およびアルキルヒドロキシアニソール類が好ましく、アスコルビ



ン酸類、エリソルビン酸類および没食子酸類がより好ましく、L-アスコルビン酸、エリソルビン酸ナトリウムおよび没食子酸n-プロピルがさらに好ましい。

有機酸化防止剤における鉄含有量は、得られる吸水性樹脂組成物における鉄含有量を低下させる観点から、5 ppm以下、好ましくは3 ppm以下であることが望ましい。

有機酸化防止剤の量は、電解質水溶液に対して十分なゲルの安定性を発現させる観点から、吸水性樹脂100重量部に対して、0.001重量部以上、好ましくは0.005重量部以上であることが望ましい。また、有機酸化防止剤をあまり多量に使用しても、その量に見合うだけのゲルの安定性および耐着色性が発現されず、却って経済的でなくなるだけでなく、吸水性樹脂組成物における鉄含有量が高くなることから、有機酸化防止剤の量は、吸水性樹脂100重量部に対して、5重量部以下、好ましくは2重量部以下であることが望ましい。これらの事項を考慮すれば、有機酸化防止剤の量は、吸水性樹脂100重量部に対して、0.001～5重量部、好ましくは0.005～2重量部であることが望ましい。

なお、有機酸化防止剤は、ゲルの安定性および耐着色性を高める観点から、通常、含酸素還元性無機塩と組み合わせて用いることが好ましい。

吸水性樹脂と含酸素還元性無機塩と有機酸化防止剤とを混合することにより、有機酸化防止剤を含有する吸水性樹脂組成物を得ることができる。これらの成分を混合する方法および混合する際の添加順序には、特に限定がない。

有機酸化防止剤を含有する吸水性樹脂組成物を製造する方法の例としては、(イ)吸水性樹脂を構成する重合前の単量体水溶液に有機酸化防止剤を添加する方法；(ロ)吸水性樹脂の含水ゲル状物に有機酸化防止剤を添加する方法；(ハ)吸水性樹脂を乾燥させている間または乾燥させた後、有機酸化防止剤を吸水性樹脂に添加する方法等が挙げられる。これらの方法の中では、その操作が簡便であ

ることから、前記（ハ）の方法が好ましい。

なお、有機酸化防止剤は、ゲルの安定性が損なわれないのであれば、粉体および水溶液のいずれの形態でも用いることができる。製造の際の操作性を考慮すれば、有機酸化防止剤は、粉体であることが好ましい。

吸水性樹脂と含酸素還元性無機塩と有機酸化防止剤とを混合する際に用いられる混合機としては、例えば、ナウターミキサー、リボン型ブレンダー、クロスロータリーミキサー、コニカルブレンダー、双腕型ニーダー、スクリュウ型ブレンダー、V字型ブレンダー、W字型ブレンダー、タービュライザー等が挙げられるが、本発明は、かかる例示のみに限定されるものではない。

かくして得られる本発明の含酸素還元性無機塩、吸水性樹脂及び有機酸化防止剤を含有する吸水性樹脂組成物における鉄含有量は、1 ppm以下、好ましくは0.5 ppm以下とされ、このように鉄含有量を調整した場合には、満足しうるゲルの安定性および耐着色性を発現させることができる。

本発明においては、前記吸水性樹脂組成物を用いて、吸収体を得ることができる。

吸収体は、吸水性樹脂組成物と親水性繊維とを有するものである。

親水性繊維には、特に限定がない。親水性繊維の例としては、セルロース繊維、人工セルロース繊維等が挙げられる。なお、親水性繊維には、本発明の目的が阻害されない範囲内であれば、疎水性を有する合成繊維が含有されていてもよい。

本発明の吸収体には、吸収体の形態保持性を高めるために、熱融着性合成繊維、ホットメルト接着剤、接着性エマルジョン等の接着性バインダーを添加してもよい。

吸収体における吸水性樹脂組成物の含有量は、尿等の体液を十分に吸収し、快適な装着感を付与する観点から、好ましくは40重量%以上、より好ましくは50重量%以上である。また、吸収体における吸水性樹脂組成物の含有量は、得ら

れる吸収体の形態保持性を高めるために、親水性繊維や接着性バインダーを含有させることを考慮して、好ましくは95重量%以下、より好ましくは90重量%以下である。これらの事項を考慮すれば、吸収体における吸水性樹脂組成物の含有量は、好ましくは40～95重量%、より好ましくは50～90重量%である。

本発明の吸収体は、吸水性樹脂組成物と親水性繊維とを有するものであればよく、その態様には特に限定がない。

好適な吸収体の態様としては、例えば、吸水性樹脂組成物と親水性繊維とを均一な組成となるように混合することによって得られた混合分散体、2枚の層状の親水性繊維の間に吸水性樹脂組成物が挟まれたサンドイッチ構造体等が挙げられる。

前記吸収体を、例えば、液体透過性シートと、液体不透過性シートとの間に保持することにより、吸収性物品とすることができる。

液体透過性シートとしては、特に限定されないが、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリエステル等の繊維からなる、エアスルー型、スパンボンド型、ケミカルボンド型、ニードルパンチ型等の不織布等が挙げらる。

液体不透過性シートとしては、特に限定されないが、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリ塩化ビニル等の樹脂からなる合成樹脂フィルム等が挙げられる。

吸収性物品の種類には、特に限定がされない。その代表例としては、紙オムツ、生理用ナプキン、失禁パッド等の衛生材料、ペット用の尿吸収材料等をはじめ、パッキング材等の土木建築用資材、ドリップ吸収剤、保冷剤等の食品鮮度保持用材料、土壌用保水材等の農園芸用物品等が挙げられる。

#### 実施例

以下、実施例および比較例により本発明をさらに詳しく説明するが、本発明はこれら実施例により何ら限定されるものではない。

なお、吸水性樹脂、含酸素還元性無機塩、有機酸化防止剤および吸水性樹脂組

成物における各鉄含有量は、前述した方法によって測定されたときの値である。

また、各実施例および各比較例で得られた吸水性樹脂組成物および該吸水性樹脂組成物を用いて得られた吸収性物品の物性は、以下の方法に従って評価した。

#### (1) 人尿吸収時のゲル安定性

成人男性から採取した人尿 39 g を 100 mL ビーカーに分取し、吸水性樹脂組成物 1 g を添加して、人尿吸収ゲルを作製した。この人尿吸収ゲルを 40℃の恒温槽内に 24 時間放置した後、以下の評価基準に従って、ゲルの安定性を評価した。

##### 〔評価基準〕

- ◎：ゲルの弾力性があり、強く押してもつぶれない。
- ：ゲルの弾力性はあるが、強く押すとつぶれる。
- △：ゲルの形状はあるが、軽くつまむとつぶれる。
- ×：ゲルの形状が崩れている。

#### (2) 生理食塩水吸収時のゲル安定性

0.9 重量%生理食塩水 39 g を 100 mL 容のビーカーに分取し、これに吸水性樹脂組成物 1 g を添加して、生理食塩水吸収ゲルを作製した。この生理食塩水吸収ゲルを 40℃の恒温槽内に 24 時間放置した後、以下の評価基準に従って、ゲルの安定性を評価した。

##### 〔評価基準〕

- ◎：ゲルの弾力性があり、強く押してもつぶれない。
- ：ゲルの弾力性はあるが、強く押すとつぶれる。
- △：ゲルの形状はあるが、軽くつまむとつぶれる。
- ×：ゲルの形状が崩れている。

#### (3) モニター試験

吸水性樹脂組成物 13 g と解砕された木材パルプ 7 g を乾式混合し、縦 40 cm、横 12 cm の大きさに成形した。得られた混合分散体の上部と下部をそれぞれ 0.5 g のティッシュペーパーで挟み、全体に荷重を加えて吸収体を作製した。

市販の赤ちゃん用オムツ（L サイズ）内部の吸収体を液体不透過性シート（バックシート）側から完全に除去したのち、前記吸収体を注意深く挿入し、テープで封をしてモニター試験用吸収性物品を作製した。

得られた吸収性物品を子供数名に使用してもらった後、その吸収性物品を回収した。

次に、回収された吸収性物品のゲル不良率、平均吸収量および漏れ率を以下の方法に従って調べた。

#### A. ゲル不良率

ゲル不良を以下の評価基準に従って評価し、ゲル不良が認められた吸収性物品の枚数を回収した吸収性物品の枚数で除した値に 100 を乗じることにより、ゲル不良率を算出した。

〔評価基準〕

×：ゲル形状が崩れている（ゲル不良とする）。

○：ゲル形状が崩れていない。

#### B. 平均吸収量

回収した吸収性物品の尿吸収量を積算した値を回収した吸収性物品の枚数で除することにより、平均吸収量を算出した。

#### C. 洩れ率

漏れのあった吸収性物品の枚数を回収した吸収性物品の枚数で除し、その値に 100 を乗じることにより、洩れ率を算出した。

#### （４）吸収性物品の耐着色性

吸水性樹脂組成物 13 g と解砕された木材パルプ 7 g とを乾式混合し、縦 40

cm、横12cmの大きさに成形した。得られた混合分散体の上部と下部をそれぞれ0.5gのティッシュペーパーで挟み、全体に荷重を加えて吸収体を作製した。この吸収体を、その上部から坪量20g/m<sup>2</sup>の液体透過性ポリエチレン製エアスルー型不織布で、また下部から液体不透過性ポリエチレンシートで挟みつけることにより、耐着色性試験用吸収性物品を作製した。

得られた吸収性物品を温度50±2℃、相対湿度90±2%に設定された恒温恒湿槽内に20日間放置した後、吸収性物品中の吸水性樹脂組成物の着色を目視で観察し、吸収性物品の耐着色性を以下の基準に基づいて評価した。

〔評価基準〕

- A：不織布を取り除き、吸収体をほぐして見ても、内部の吸水性樹脂は着色していない。
- B：不織布の上部から見たとき、吸水性樹脂による着色が認められないが、不織布を取り除き、吸収体をほぐすと、一部の吸水性樹脂に着色が認められる。
- C：不織布の上部から見て、吸水性樹脂による着色が認められる。

製造例1

攪拌機、還流冷却器、滴下ロート、温度計および窒素ガス導入管を備えた1000mL容の五つ口円筒型丸底フラスコに、n-ヘプタン500mLを加えた。これに、界面活性剤としてHLBが3.0のショ糖脂肪酸エステル〔三菱化学（株）製、商品名：S-370〕0.92gを添加して分散させ、昇温して界面活性剤を溶解させた後、55℃まで冷却した。

上記とは別に、500mL容の三角フラスコに80重量%アクリル酸水溶液92gを加えた。外部から冷却しながら、この三角フラスコに30重量%水酸化ナトリウム水溶液102.2g（鉄含有量：0.2ppm）を滴下し、アクリル酸の75モル%を中和し、アクリル酸の部分中和物を調製した。さらに、水50.

2 g、重合開始剤の過硫酸カリウム 0.11 g および架橋剤としてエチレングリコールジグリシジルエーテル 9.2 mg を添加し、1 段目重合用の単量体水溶液を調製した。

この 1 段目重合用の単量体水溶液の全量を上記の五つ口円筒型丸底フラスコに攪拌下で加えて分散させ、系内を窒素ガスで十分に置換した後、昇温し、浴温を 70 °C に保持して、重合反応を 1 時間行った後、室温まで冷却して重合スラリー液を得た。

さらに別の 500 mL 容の三角フラスコに、80 重量% アクリル酸水溶液 119.1 g を加え、冷却しながら 30 重量% 水酸化ナトリウム水溶液 132.2 g (鉄含有量: 0.2 ppm) を滴下し、アクリル酸の 75 モル% を中和し、水 27.4 g、過硫酸カリウム 0.14 g およびエチレングリコールジグリシジルエーテル 35.7 mg を添加し、2 段目重合用の単量体水溶液を調製し、氷水浴内で冷却した。

この 2 段目重合用の単量体水溶液の全量を前記で得られた重合スラリー液に添加した後、再び系内を窒素ガスで十分に置換した後に昇温し、浴温を 70 °C に保持して、2 段目の重合反応を 2 時間行った。重合反応終了後、n-ヘプタンに分散させた含水ゲル状物から共沸蒸留により水分のみを系外に除去した。得られたゲル状物に 2 重量% エチレングリコールジグリシジルエーテル水溶液 8.44 g を添加し、さらに水分および n-ヘプタンを蒸留により除去して乾燥し、吸水性樹脂 215.5 g を得た。この吸水性樹脂中の鉄含有量は 0.3 ppm であった。

## 製造例 2

製造例 1 において、30 重量% 水酸化ナトリウム水溶液 (鉄含有量: 0.2 ppm) の代わりに 30 重量% 水酸化ナトリウム水溶液 (鉄含有量: 0.5 ppm) を用いた以外は、製造例 1 と同様の操作を行い、吸水性樹脂 216.9 g を得

た。この吸水性樹脂中の鉄含有量は0.6 ppmであった。

### 製造例 3

製造例 1 において、30重量%水酸化ナトリウム水溶液（鉄含有量：0.2 ppm）の代わりに30重量%水酸化ナトリウム水溶液（鉄含有量：3.3 ppm）を用いた以外は、製造例 1 と同様な操作を行い、吸水性樹脂 216.9 gを得た。この吸水性樹脂中の鉄含有量は3.5 ppmであった。

### 製造例 4

製造例 1 において、30重量%水酸化ナトリウム水溶液（鉄含有量：0.2 ppm）の代わりに30重量%水酸化ナトリウム水溶液（鉄含有量：6.5 ppm）を用いた以外は、製造例 1 と同様な操作を行い、吸水性樹脂 216.9 gを得た。この吸水性樹脂中の鉄含有量は7.0 ppmであった。

### 実施例 1

2 L容のポリエチレン容器に、製造例 1 と同様の方法で得られた吸水性樹脂 100重量部を仕込み、亜硫酸ナトリウムA〔大東化学工業（株）製、商品名：無水亜硫酸ソーダ・食品添加物用、鉄含有量：1.4 ppm〕2重量部を添加し、クロスロータリーミキサー〔明和工業（株）製、品番：CM-3〕を用いて、ポリエチレン容器を自転速度30 rpm、公転速度30 rpmで1時間混合し、吸水性樹脂組成物を得た。この吸水性樹脂組成物中の鉄含有量は0.3 ppmであった。

得られた吸水性樹脂組成物 13 g と解砕された木材パルプ 7 g とを乾式混合し、縦40 cm、横12 cmの大きさに成形した。得られた混合分散体の上部と下部をそれぞれ0.5 gのティッシュペーパーで挟み、全体に荷重を加えて吸収体を作製した。



市販の赤ちゃん用オムツ（Lサイズ）内部の吸収体を液体不透過性シート（バックシート）側から完全に除去したのち、前記吸収体を注意深く挿入し、テープで封をしてモニター試験用吸収性物品を作製した。

一方、前記吸収体を、その上部から坪量  $20 \text{ g/m}^2$  の液体透過性ポリエチレン製エアスルー型不織布で、また下部から液体不透過性ポリエチレン製シートで挟みつけることにより、耐着色性試験用吸収性物品を作製した。

得られた吸水性樹脂組成物の物性として、前述の方法に従い、（１）人尿吸収時のゲル安定性、（２）生理食塩水吸収時のゲル安定性を評価した。また、モニター試験用吸収性物品を用いて前述の（３）モニター試験を実施した。さらに、耐着色性試験用吸収性物品を用いて前述の（４）吸収性物品の耐着色性を評価した。その結果を表 2 に示す。

#### 実施例 2～6 および比較例 1～3

実施例 1 において、吸水性樹脂として、表 1 に示す製造例番号で得られた吸水性樹脂 100 重量部を用い、含酸素還元性無機塩として、表 1 に示す含酸素還元性無機塩を表 1 に示す添加量で用いたほかは、実施例 1 と同様にして吸水性樹脂組成物を得た。得られた吸水性樹脂組成物中の鉄含有量を表 1 に示す。

なお、表 1 および後述する表 3 に記載の含酸素還元性無機塩の詳細は、以下のとおりである。

- ・亜硫酸ナトリウム A：大東化学工業（株）製、商品名：無水亜硫酸ソーダ・食品添加物用、鉄含有量：1.4 ppm
- ・亜硫酸ナトリウム B：大東化学工業（株）製、商品名：無水亜硫酸ソーダの 90、鉄含有量：23 ppm
- ・亜硫酸水素ナトリウム A：大東化学工業（株）製、商品名：無水重亜硫酸ソーダ、鉄含有量：1.5 ppm
- ・亜硫酸水素ナトリウム B：関東化学（株）製、商品名：亜硫酸水素ナトリウム

1 級、鉄含有量：15 ppm

- ・ピロ亜硫酸カリウム：大東化学工業（株）製、商品名：ピロ亜硫酸カリ、鉄含有量：1.3 ppm
- ・亜二チオン酸ナトリウム：日産化学工業（株）製、商品名：ハイドロサルファイト・食品添加物用、鉄含有量：1.9 ppm
- ・亜硝酸ナトリウム：日産化学工業（株）製、商品名：亜硝酸ソーダ、鉄含有量：2.5 ppm

表 1

実施例 番号	吸収性樹脂		含酸素還元性無機塩			吸収性樹脂組成物	
	種類	鉄含有量 (ppm)	種 類	鉄含有量 (ppm)	添加量 (重量部)	鉄含有量 (ppm)	
1	製造例 1	0.3	亜硫酸ナトリウムA	1.4	2	0.3	
2	製造例 2	0.6	亜硫酸ナトリウムA	1.4	2	0.6	
3	製造例 1	0.3	亜硫酸水素ナトリウムA	1.5	2	0.3	
4	製造例 1	0.3	ピロ亜硫酸カリウム	1.3	3	0.3	
5	製造例 1	0.3	亜二チオン酸ナトリウム	1.9	2	0.3	
6	製造例 1	0.3	亜硝酸ナトリウム	2.5	2	0.3	
比較例 1	製造例 2	0.6	亜硫酸ナトリウムB	23	3	1.3	
	製造例 3	3.5	亜硫酸ナトリウムB	23	2	3.9	
	製造例 4	7.0	亜硫酸水素ナトリウムB	15	2	7.2	

(注) 「吸収性樹脂」の「種類」の欄に記載の製造例番号は、その製造例で得られた吸収性樹脂を用いたことを意味する。

次に、各実施例または各比較例で得られた吸水性樹脂組成物を用いて、実施例 1 と同様にして吸収体および吸収性物品を作製し、その物性を評価した。その結果を表 2 に示す。

表 2

実施例 番号	人尿吸 収時の ゲル安 定性	生理食塩 水吸収時 のゲル安 定性	モ ニ タ ー 試 験				吸収性 物品の 耐着色 性
			回収 枚数	ゲル不良率 (%)	平均吸収量 (g/枚)	洩れ率 (%)	
1	◎	○	154	1.3	182	1.9	A
2	○	○	150	5.3	160	8.0	A
3	◎	○	148	2.7	158	2.7	A
4	○	△	155	3.2	142	3.9	A
5	○	△	159	3.8	168	4.4	A
6	○	△	157	3.8	143	5.1	A
比較例 1	△	×	133	12.8	135	14.3	B
2	△	×	140	19.3	149	17.1	C
3	△	×	149	23.5	169	20.1	C

表 2 に示された結果から、各実施例によれば、吸水体に含まれている吸水性樹脂量が多くても人尿等の体液に対するゲルの安定性に優れ、高温高湿下であっても耐着色性に優れた吸水性樹脂組成物が得られることがわかる。

#### 実施例 7

2 L 容のポリエチレン容器に、製造例 1 と同様の方法で得られた吸水性樹脂 100 重量部を仕込み、亜硫酸ナトリウム〔大東化学工業（株）製、商品名：無水

亜硫酸ソーダ・食品添加物用、鉄含有量：1.4 ppm] 2重量部およびL-アスコルビン酸（ロシュ・ビタミン・ジャパン社製の商品名：L-アスコルビン酸、鉄含有量：0.8 ppm）0.02重量部を添加し、クロスロータリーミキサー〔明和工業（株）製、品番：CM-3〕を用いて、ポリエチレン容器を自転速度30 rpm、公転速度30 rpmで1時間混合し、吸水性樹脂組成物を得た。得られた吸水性樹脂組成物中の鉄含有量を表3に示す。

得られた吸水性樹脂組成物13gと解砕された木材パルプ7gとを乾式混合し、縦40cm、横12cmの大きさに成形した。得られた混合分散体の上部と下部をそれぞれ0.5gのティッシュペーパーで挟み、全体に荷重を加えて吸収体を作製した。

市販の赤ちゃん用オムツ（Lサイズ）内部の吸収体を液体不透過性シート（バックシート）側から完全に除去したのち、前記吸収体を注意深く挿入し、テープで封をしてモニター試験用吸収性物品を作製した。

一方、前記吸収体を、その上部から坪量20 g/m<sup>2</sup>の液体透過性ポリエチレン製エアスルー型不織布で、また下部から液体不透過性ポリエチレン製シートで挟みつけることにより、耐着色性試験用吸収性物品を作製した。

得られた吸水性樹脂組成物の物性として、前述の方法に従い、（1）人尿吸収時のゲル安定性、（2）生理食塩水吸収時のゲル安定性を評価した。また、モニター試験用吸収性物品を用いて前述の（3）モニター試験を実施した。さらに、耐着色性試験用吸収性物品を用いて前述の（4）吸収性物品の耐着色性を評価した。その結果を表4に示す。

#### 実施例8～13および比較例4～6

実施例7において、吸水性樹脂として、表3に示す製造例番号で得られた吸水性樹脂100重量部を用い、含酸素還元性無機塩および有機酸化防止剤として、表3に示す含酸素還元性無機塩および有機酸化防止剤を表3に示す添加量で用い

たほかは、実施例 7 と同様にして吸水性樹脂組成物を得た。得られた吸水性樹脂組成物中の鉄含有量を表 3 に示す。

なお、表 3 に記載の有機酸化防止剤の詳細は、以下のとおりである。

- ・ L-アスコルビン酸 A : ロシュ・ビタミン・ジャパン社製の商品名 : L-アスコルビン酸、鉄含有量 : 0.8 ppm
- ・ 没食子酸 n-プロピル A : 大日本製薬 (株) 製、商品名 : 没食子酸 n-プロピル・食品添加物用、鉄含有量 : 0.4 ppm
- ・ 没食子酸 n-プロピル B : ミドリ化学 (株) 製、商品名 : 没食子酸 n-プロピル飼料級、鉄含有量 : 5.5 ppm
- ・ エリソルビン酸ナトリウム : 藤沢薬品工業 (株) 製、商品名 : エリソルビン酸ナトリウム、鉄含有量 : 1.2 ppm
- ・ 2-メルカプトベンズイミダゾール : 大内振興化学 (株) 製、商品名 : ノクラック MB、鉄含有量 : 1.8 ppm
- ・ プロトカテキュ酸エチル : 関東化学 (株) 製、商品名 : プロトカテキュ酸エチル、鉄含有量 : 1.8 ppm
- ・ ブチルヒドロキシアニソール : 和光純薬工業 (株) 製、商品名 : ブチルヒドロキシアニソール、鉄含有量 : 2.0 ppm
- ・ L-アスコルビン酸 B : 和光純薬工業 (株) 製、商品名 : L-アスコルビン酸 1 級、鉄含有量 : 6.2 ppm

表3

実施例 番号	吸水生樹脂		含酸素還元性無機塩			有機酸化防止剤			吸水性 樹脂組成物	
	種類	鉄含有量 (ppm)	種類	鉄含有量 (ppm)	添加量 (重量部)	種類	鉄含有量 (ppm)	添加量 (重量部)	鉄含有量 (ppm)	
7	製造例 1	0.3	亜硫酸ナトリウムA	1.4	2	L-アスコルビ酸A	0.8	0.02	0.3	
8	製造例 2	0.6	亜硫酸ナトリウムA	1.4	2	L-アスコルビ酸A	0.8	0.01	0.6	
9	製造例 1	0.3	亜硫酸ナトリウムA	1.4	1	没食子酸-ブチルA	0.4	0.1	0.3	
10	製造例 1	0.3	亜硫酸水素ナトリウムA	1.5	2	コハルビン酸ナトリウム	1.2	0.05	0.3	
11	製造例 1	0.3	ヒドロ硫酸ナトリウム	1.3	3	2-メルカプトベンズアミドナトリウム	1.8	0.1	0.3	
12	製造例 1	0.3	亜二チン酸ナトリウム	1.9	2	アトキチン酸ナトリウム	1.8	0.5	0.3	
13	製造例 1	0.3	亜硝酸ナトリウム	2.5	2	アトキチン酸ナトリウム	2.0	1	0.4	
比較例 4	製造例 2	0.6	亜硫酸ナトリウムB	23	3	L-アスコルビ酸B	6.2	0.02	1.3	
5	製造例 3	3.5	亜硫酸ナトリウムB	23	2	L-アスコルビ酸B	6.2	0.02	3.9	
6	製造例 4	7.0	亜硫酸水素ナトリウムB	15	2	没食子酸-ブチルB	5.5	0.1	7.2	

(注) 「吸水生樹脂」の「種類」の欄に記載の製造例番号は、その製造例で得られた吸水生樹脂を用いたことを意味する。

次に、得られた吸水性樹脂組成物を用いて、実施例 7 と同様にして吸収体および吸収性物品を作製し、その物性を評価した。その結果を表 4 に示す。

表 4

実施例 番号	人尿吸 収時の ゲル安 定性	生理食塩 水吸収時 のゲル安 定性	モ ニ タ ー 試 験				吸収性 物品の 耐着色 性
			回収 枚数	ゲル不良率 (%)	平均吸収量 (g/枚)	洩れ率 (%)	
7	◎	◎	165	1.2	171	1.2	A
8	○	◎	170	4.7	152	5.9	A
9	◎	◎	159	1.9	180	1.9	A
10	◎	◎	151	2.6	175	2.6	A
11	○	○	152	3.3	177	3.9	A
12	○	○	159	3.1	146	4.4	A
13	○	○	159	3.8	183	5.0	A
比較例 4	△	△	135	11.1	153	13.3	B
5	△	△	142	17.6	148	20.4	C
6	△	△	158	20.3	159	22.2	C

表 4 に示された結果から、各実施例によれば、吸収体に含まれる吸水性樹脂量が多くても人尿等の体液に対するゲルの安定性に優れ、更には生理食塩水等の電解質水溶液に対するゲルの安定性にも優れており、高温高湿下であっても耐着色性に優れた吸水性樹脂組成物が得られることがわかる。

以上説明したように、本発明の吸水性樹脂組成物は、吸収体に含まれる吸水性樹脂量が多くても人尿等の体液に対するゲルの安定性に優れ、高温高湿下であっても耐着色性に優れたものであり、該吸水性樹脂組成物を用いれば、これらの物性に優れた吸収体および吸収性物品を得ることができる。

### 産業上の利用可能性

本発明の吸水性樹脂組成物が用いられた吸収体および吸収性物品は、紙オムツ、生理用ナプキン、失禁パッド等の衛生材料、ペット用の尿吸収材料等をはじめ、パッキング材等の土木建築用資材、ドリップ吸収剤、保冷剤等の食品鮮度保持用材料、土壌用保水材等の農園芸用物品等として好適に使用しうるものである。



## 請求の範囲

1. 含酸素還元性無機塩および吸水性樹脂を含有してなり、鉄含有量が1 ppm以下である吸水性樹脂組成物。
2. 含酸素還元性無機塩が、亜硫酸塩、亜硫酸水素塩、ピロ亜硫酸塩、亜二チオン酸塩および亜硝酸塩からなる群より選ばれた少なくとも1種である請求項1記載の吸水性樹脂組成物。
3. 含酸素還元性無機塩の量が、吸水性樹脂100重量部に対して0.01～5重量部である請求項1または2記載の吸水性樹脂組成物。
4. さらに有機酸化防止剤を含有する請求項1～3いずれか記載の吸水性樹脂組成物。
5. 有機酸化防止剤が、アスコルビン酸類、エリソルビン酸類、没食子酸類、プロトカテキュ酸類、ベンズイミダゾール類およびアルキルヒドロキシアニソール類からなる群より選ばれた少なくとも1種である請求項4記載の吸水性樹脂組成物。
6. 有機酸化防止剤の量が、吸水性樹脂100重量部に対して、0.001～5重量部である請求項4または5記載の吸水性樹脂組成物。
7. 請求項1～6いずれか記載の吸水性樹脂組成物と親水性繊維とを有する吸収体。

8. 吸水性樹脂組成物の含有量が、40～95重量%である請求項7記載の吸収体。

9. 液体透過性シートと液体不透過性シートとの間に、請求項7または8記載の吸収体が保持されてなる吸収性物品。

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.  
PCT/JP03/14865

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08L101/14, C08K3/00, C08K5/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08L101/14, C08K3/00, C08K5/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)  
WPI/L

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 63-118375 A (Seitetsu Kagaku Kogyo Co., Ltd.), 23 May, 1988 (23.05.88), Full text & EP 249391 A2 & CN 87104090 A & US 4863989 A & US 4972019 A	1-9
Y	JP 8-52203 A (Kao Corp.), 27 February, 1996 (27.02.96), Claims; Par. Nos. [0003] to [0013] (Family: none)	1-9
Y	JP 8-127725 A (Kao Corp.), 21 May, 1996 (21.05.96), Claims; Par. Nos. [0003] to [0006] & WO 96/7437 A1 & EP 781146 A1 & CN 1157575 A & US 6335398 B1	1-9

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☐ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:	"I" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance	"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"E" earlier document but published on or after the international filing date	"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)	"&" document member of the same patent family
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means	
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed	

Date of the actual completion of the international search  
18 February, 2004 (18.02.04)

Date of mailing of the international search report  
02 March, 2004 (02.03.04)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP03/14865

**C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 11-315148 A (Nippon Shokubai Co., Ltd.), 16 November, 1999 (16.11.99), Claims; Par. Nos. [0005], [0035] & EP 668080 A2 & US 5610208 A	1-9

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L101/14, C08K3/00, C08K5/00

## B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L101/14, C08K3/00, C08K5/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

WPI/L

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 63-118375 A (製鉄化学工業株式会社) 1988. 05. 23, 全文 & EP 249391 A2 & CN 87104090 A & US 4863989 A & US 4972019 A	1-9
Y	JP 8-52203 A (花王株式会社) 1996. 02. 27, 特許請求の範囲, [0003] -[0013] (ファミリーなし)	1-9
Y	JP 8-127725 A (花王株式会社) 1996. 05. 21, 特許請求の範囲, [0003] -[0006] & WO 96/7437 A1 & EP 781146 A1 & CN 1157575 A & US 6335398 B1	1-9

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

## の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

18. 02. 2004

国際調査報告の発送日

02. 3. 2004

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

関 政立

4 J

8 6 1 9

電話番号 03-3581-1101 内線 3455

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
Y	JP 11-315148 A (株式会社日本触媒) 1999. 11. 16, 特許請求の範囲, [0005], [0035] & EP 668080 A2 & US 5610208 A	1 - 9